

常温下废食用油与老化沥青的扩散行为分析*

石靖文¹,刘梦梅¹,周智勇¹,范毡仔¹,吴泳豪¹,杨杰²,魏必成²

(1. 福建农林大学 交通与土木工程学院,福州 350108;

2. 福建省高速技术咨询有限公司 福建省高速公路工程重点实验室,福州 350001)

摘要: 探究常温下再生剂在老化沥青体系中的扩散行为有助于沥青混合料冷再生的研究。通过浸泡法、傅立叶变换红外光谱试验(FTIR)与旋转流变仪试验,从宏、微观尺度研究不同扩散时间下,废食用油对老化沥青针入度、官能团、复数模量与相位角变化规律的影响,并将试验结果进行对比分析。同时基于分子动力学理论,建立废食用油与老化沥青分子模型,构建其界面扩散模型,根据扩散系数揭示二者在体系中的扩散行为。研究结果表明,在常温下废食用油能一定程度上恢复老化沥青的基本技术性能,补充因老化缺失的轻质组分,还原其流变性能。此外,分子动力学模拟得出废食用油分子运动速度快于老化沥青分子,说明废食用油可在较短时间内软化老化沥青。由此可知,在常温下废食用油浸润软化老化沥青效率良好。

关键词: 废食用油;老化沥青;常温扩散;浸泡法;FTIR;流变试验;分子动力学模拟

中图分类号: U414

文献标识码: A

DOI:10.3969/j.issn.1001-9731.2025.05.026

0 引言

目前,我国道路工程进入养护维修阶段,沥青路面的养护维修会产生大量的废旧沥青混合料(Reclaimed Asphalt Pavement, RAP),而沥青老化后各基本技术指标不再满足路用要求,故废旧沥青混合料的再生显得尤为关键。如若对废料处理不当或丢弃,不仅造成材料与土地资源浪费,还会导致环境污染。因此,如何有效回收废旧沥青混合料并加以运用成为道路养护中的热点问题。当前,废旧沥青混料的再生根据再生温度的划分主要分为热再生和冷再生,沥青路面冷再生技术相比热再生技术具有的优点有施工简单、能源消耗低和经济环保等。

再生剂作为修复沥青路用性能可行性选择之一,研究表明再生剂的扩散对老化沥青的再生效果起着关键性作用^[1],其对高温状态下沥青的再生已有大量研究,而常温状态下对再生剂的扩散行为研究却鲜有涉及。同时,在沥青路面冷再生过程中,再生剂与老化沥青直接接触,再生剂的扩散性能对老化沥青路用性能的恢复产生重要影响。通常情况下,在冷再生过程中加入再生剂作为软化剂,起到软化老化沥青的作用,从而改善冷再生沥青混合料的性能,提高冷再生沥青路面的使用寿命,故常温条件下,再生剂在老化沥青中扩散机理的研究,对提高废旧沥青混合料冷再生的效率、质量具有重要意义。

研究人员关于再生剂与老化沥青之间的扩散已经

做出许多研究成果。Dinh等^[2-3]基于Fick定律扩散模型描述再生剂与老化沥青的扩散现象,研究表明扩散时间对再生剂与老化沥青扩散量密切相关。Zhang等^[4]对沥青试样进行傅立叶红外分析,认为老化沥青再生的过程主要以物理反应为主。李萍等^[5]采用傅立叶变换红外光谱仪和荧光显微镜,研究表明随着再生剂扩散越深,其含量越少。Xu等^[6]等利用开源原子/分子模拟器建立分子动力学模型,发现沥青内部空隙促进再生剂与沥青间的融合。许勐^[7]利用分子动力学模型构建再生剂与长期老化沥青分子模型,认为再生剂更容易向沥青内部扩散。崔亚楠等^[8]采用分子动力学软件,针对不同模拟时间下老化沥青体系进行模拟,得出再生剂扩散速率随着模拟时间的延长逐渐减缓的结论,认为扩散时间对扩散速率产生影响。

本文以老化沥青为研究对象,探究常温条件下废食用油在老化沥青体系中的扩散行为。首先,通过再生前后沥青针入度的变化,讨论废食用油对沥青针入度的影响与不同扩散时间下的扩散效果;其次,进行傅立叶红外光谱试验(FTIR)与旋转流变仪试验,分析常温状态下扩散时间对再生沥青官能团以及流变性能的影响,探究扩散变化规律;最后,基于分子动力学模拟建立二者分子模型并构建扩散模型,计算均方位移参数与扩散系数。综上,总结常温条件下废食用油在老化沥青体系中的扩散规律,以期对后续基于废食用油作为再生剂的RAP料冷再生研究提供理论支撑。

* 基金项目:福建省高速技术咨询有限公司(福建省高速公路工程重点实验室)开放课题项目(BKY00-20231098);福建省中青年教师教育科研项目(Kla21021A)

收到初稿日期:2024-06-17

收到修改稿日期:2024-08-19

通讯作者:刘梦梅, E-mail: mengmei.liu@fafu.edu.cn

作者简介:石靖文(2001—),男,硕士研究生,师承刘梦梅讲师,从事道路绿色材料研究。

1 实验与模拟

1.1 实验原材料

选择 Esso70 # 沥青作为基质沥青,并对其进行室内长期和短期模拟老化。老化试验模具尺寸为 500 mm(长)×250 mm(宽)×3 mm(高),将 125 g 熔融状态下的沥青均匀摊铺在模具中,形成 1 mm 的沥青薄膜,随后放入烘箱。首先,通过 163 ℃ 环境下加热 2 h,进行沥青短期模拟老化,并将其再次置于 95 ℃ 烘箱中加热 72 h,获得长期老化沥青试件^[9]。上述老化方法与旋转薄膜烘箱测试(RTFOT)相比,在 163 ℃ 加热 120 min 得到的短期老化沥青具有相似的粘弹性行为,同时在 95 ℃ 加热 72 h 得到的长期老化沥青和加压老化测试(PAV)相比可以得出相同的结论。根据《公路工程沥青及沥青混合料试验规程》(JTG E20-2011)对 3 种不同沥青基本性能进行测试,具体指标见表 1。

表 1 3 种沥青主要技术指标

Table 1 Main technical indexes of three kinds of asphalt

Asphalt type	Softening point (global method)/℃	Penetration (25 ℃) /0.1 mm	Ductility (15 ℃)/cm
Asphalt	47.2	71.4	144.7
Short-term aging asphalt	52.3	27.5	10.8
Long-term aging asphalt	59.2	17.9	6.0

研究表明废食用油可以恢复老化沥青的流变性能^[10],能显著降低老化沥青中的亚砷基团 S=O 和羧基 C=O^[11],含有废食用油的再生沥青表现出优良的低温性能^[12-13],同时,废食用油与沥青之间具有良好的

表 2 废食用油性能指标

Table 2 Performance index of waste edible oil

Pilot project	Test result	Technical requirements of JTG/T 5521-2019 asphalt regenerant
Appearance	Yellow-brown flow dynamics	—
Density/(g/cm ³)	0.84	—
Viscosity at 60 ℃/mm ² /s	54.7	20~175
Flash point/℃	246	≥220

1.3 微观实验

1.3.1 旋转流变仪试验

选用直径 25 mm 的圆柱体硅胶模具,取等量室内模拟老化的老化沥青进行注模,冷却静置 1.5 h 以上,在老化沥青样本表层涂抹掺量为 6% 的废食用油,以此模拟废食用油在老化沥青中的扩散过程,将试验样本置于 25 ℃ 常温环境下 1、3、5 天,利用旋转流变仪进行试验并分析试验结果。选取震荡时间扫描:CD 模式,应变控制率 1%,试验温度 25 ℃,试验频率 10 rad/s,时间 300 s。

相容性,双方不会发生化学反应^[14],且对废食用油进行化学分析,结果表示其主要成分为脂肪酸,理论上可作为再生剂在沥青再生工艺中使用。上述结论表明,添加适量的废食用油可使老化沥青恢复至原有沥青的各项基本技术要求。故本研究选择废食用油作为再生剂,采用最大孔径 15 μm 定性滤纸过滤的废食用油,如图 1 所示。废食用油相关指标见表 2。

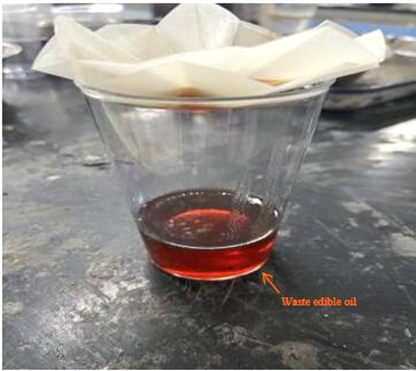


图 1 定性滤纸过滤废食用油

Fig.1 Qualitative filter paper filter waste edible oil

1.2 宏观试验及掺量选择

本次试验选用浸泡法^[15]来研究生物油在老化沥青中的扩散行为,并利用针入度试验对其黏度进行表征^[16]。具体步骤:将一定量室内模拟老化沥青浇入到圆柱体模具中,室温冷却 1.5 h,基于已有研究,废食用油掺量为 6% 时,再生沥青低温性能提升更明显,且对其高温性能的影响越小^[17]。因此添加 6% 掺量废食用油至老化沥青表层,使其均匀摊开,将其保持在 25 ℃ 环境下静置 1、3、5 天,随后使用沥青针入度仪测定其针入度值。针尖触碰至油层与沥青层分界处开始测量,重复试验 3 次取平均值。

流变试验样本如图 2 所示。

1.3.2 傅立叶光谱试验

选用圆柱体亚克力模具(内径 41 mm,高 80 mm),取等量室内模拟老化的老化沥青置于模具高 4 cm 处,冷却静置 1.5 h 以上。在此基础上加入相应掺量(6%)的废食用油,以此模拟废食用油在老化沥青中的扩散过程。将加入废食用油和老化沥青的容器置于 25 ℃ 常温环境下 1、3、5 天,最后将容器样本放进-10 ℃ 冰柜中冷冻 30 min。在油层与沥青层界面以下

1 cm处将抹刀加热并截取适量沥青样本,利用傅立叶变换红外光谱仪进行试验并分析试验结果。扩散示意图如图 3 所示。

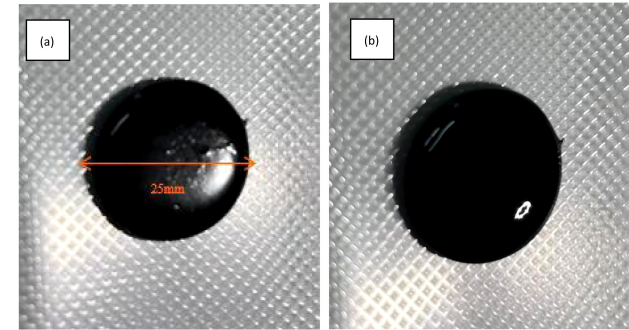


图 2 流变试验样本:(a) 未加废食用油;(b) 加入废食用油

Fig.2 Rheological test samples: (a) no waste edible oil was added; (b) adding waste edible oil

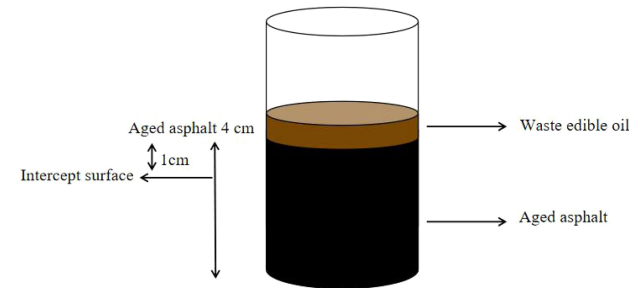


图 3 扩散示意图

Fig.3 Diffusion diagram

1.4 分子动力学模拟

1.4.1 废食用油与老化沥青分子模型构建

沥青是一种常见的沥青石油产品,主要用途作为道路建筑材料使用,外观呈黑色液体状。沥青组成分

类主要为三组分或四组分。本次模拟使用已有研究成果的四组分构建老化沥青分子,选取沥青中的饱和分(正二十二烷),芳香分,沥青质(塔里木沥青质),胶质(胜利渣油胶质)^[18-20]主要分子结构建立老化沥青分子模型。各分子模型如图 4 所示。

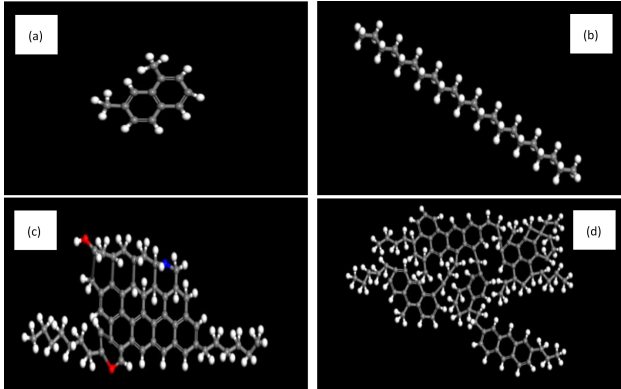


图 4 沥青四组分组成:(a) 芳香分;(b) 饱和分;(c) 沥青质;(d) 胶质

Fig.4 Asphalt four-component composition: (a) aromatics; (b) saturates; (c) asphaltene; (d) gum

根据表 3 设置各组分个数, m (芳香分): m (饱和分): m (沥青质): m (胶质)=16:5:6:5,以确保老化沥青分子模型构建的合理性。分子模型组分质量百分比同见表 3。老化沥青分子模型构建步骤:在 MS 软件 Amorphous Cell 模块中添加老化沥青四组分的分子模型,力场选择 COMPASS II,温度设置 25 ℃,构建初始密度 1.0 g/cm³。建立的老化沥青分子模型如图 5 所示。

表 3 不同类型沥青的四组分质量百分比

Asphalt type	The mass fraction of each component of the four components of asphalt/%			
	Saturates	Aromatics	Gum	Asphaltene
Asphalt ^[21]	8.6	41.3	25.1	20.5
Aged asphalt ^[22]	10.0	17.0	45.0	28.0
Aging asphalt model	10.0	16.0	45.6	28.4

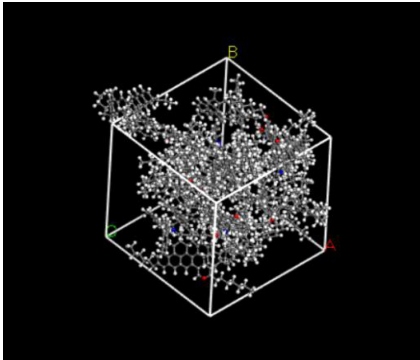


图 5 老化沥青分子模型

Fig.5 Aged asphalt molecular model

废食用油主要由不饱和脂肪酸和饱和脂肪酸组成,如亚麻酸、油酸等。由于可能含有一定量的水分、盐等杂质,因此本次研究选取废食用油中主要组成分子来建立其分子模型结构。研究表明,废食用油主要由十六烷酸(C₁₆H₃₂O₂)、亚麻酸(C₁₈H₃₀O₂)、油酸(C₁₈H₃₄O₂)和硬脂酸(C₁₈H₃₆O₂)组成^[23]。根据以上主要分子建立废食用油分子模型,废食用油主要组成分子如图 6 所示。

根据表 4 各成分质量分数比构建废食用油分子模型:在 MS 软件 Amorphous Cell 模块中添加废食用油主要组成的分子模型,力场选择 COMPASS II,温度设置 25 ℃,构建初始密度为 0.84 g/cm³。废食用油分

子模型如图 7 所示。

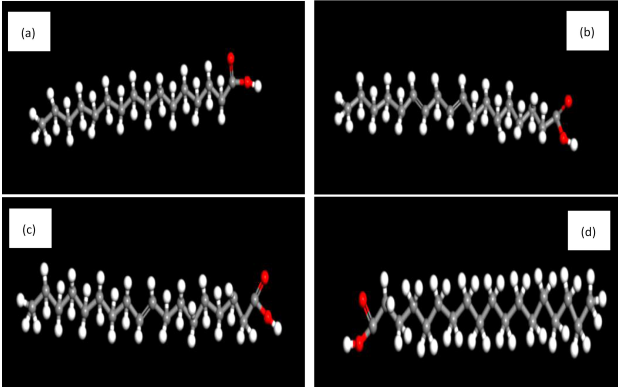


图 6 废食用油主要组成:(a) 十六烷酸;(b) 亚麻酸;
(c) 油酸;(d) 硬脂酸

Fig.6 The main components of waste edible oil: (a) hexadecanoic acid; (b) linolenic acid; (c) oleic acid; (d) stearic acid

表 4 废食用油组成质量百分比

Table 4 The percentage of waste edible oil composition quality

The main composition of waste edible oil is mass fraction/%			
Hexadecanoic acid	Linolenic acid	Linolenic acid	Stearic acid
17.7	29.1	40.1	13.1

1.4.2 模型优化及模拟

分子模型建立以后进行模型优化:(1)使用 For-

表 5 模型模拟后的参数

Table 5 Parameters after model simulation

Model name	Temperature/℃	Density/g · cm ⁻³
Aging asphalt molecules	26.56	1.069
Waste edible oil molecules	25.00	0.882

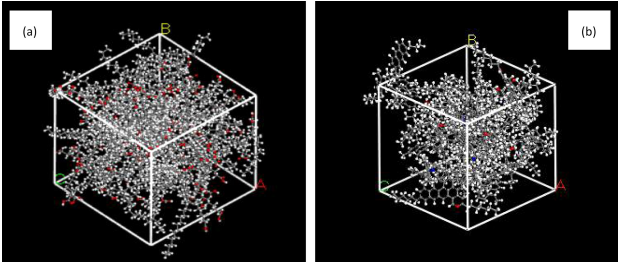


图 8 Dynamics 后的模型:(a) 废食用油分子;(b) 老化沥青分子

Fig.8 The model after Dynamics: (a) waste edible oil molecules; (b) aging asphalt molecules

1.4.3 扩散模型建立

为了解废食用油分子和老化沥青分子的扩散行为,使用 MS 软件的 Build Layers 指令建立界面扩散模型,设置两层 1.0Vacuum,构建的扩散模型如图 9 所示。

由于本文研究冷再生条件下再生剂在老化沥青的扩散行为,因此设定温度为 25 ℃,选择等温等压系综,持续时间 50 ps,Dynamics 后的模型如图 10 所示。

cite 模块中的 Geometry Optimization 进行分子结构优化;(2)利用 Anneal 退火处理对分子模型进行弛豫,获得稳定结构,使晶胞中的分子团聚在一起。

在 MS 软件中,将所建模型在 NPT 系综下进行 50 ps 模拟,在开始阶段,可以看到模型密度有一个骤降的过程,此后,在 0~10 ps 迅速上升,最后便趋于稳定,数值稳定在 1.00~1.069 g/cm³ 之间。已有研究发现基质沥青在常温下的密度介于 0.981~1.031 g/cm³ 之间^[24],且老化沥青密度应大于基质沥青密度,故本次模拟建模合理。模型优化后通过 Dynamics 任务计算两分子模型如图 8 所示,参数见表 5。

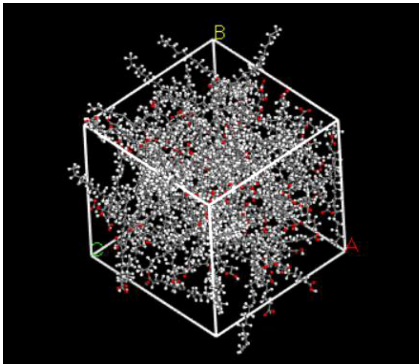


图 7 废食用油分子模型

Fig.7 Molecular model of waste edible oil

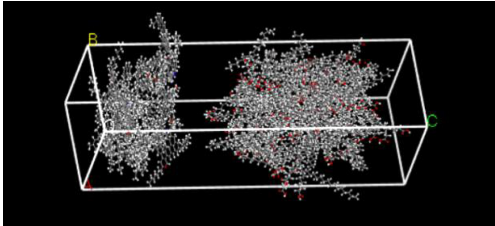


图 9 老化沥青与废食用油界面模型

Fig.9 Interface model of aged asphalt and waste edible oil

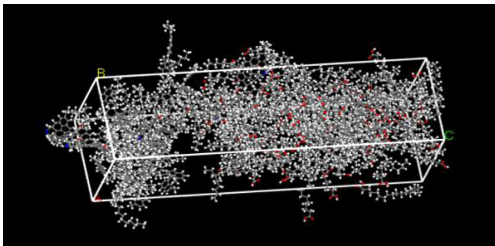


图 10 Dynamics 后的界面扩散模型

Fig.10 Interface diffusion model after Dynamics

2 结果与讨论

2.1 针入度变化规律

本研究通过沥青试样针入度变化规律,间接评价废食用油的扩散效率。同时,沥青的针入度与黏度具有良好的相关性,可用针入度的变化间接反映黏度的变化。图 4 为不同扩散时间下再生沥青针入度变化曲线。

由图 11 可知随着废食用油在老化沥青中扩散时间的延长,再生沥青的针入度逐渐增大,沥青的黏度逐渐降低,表明废食用油可以增加沥青的针入度,改善老化沥青的基本技术性能,对其起到良好的再生效果。在扩散初期的 1 天内,沥青的针入度随扩散时间的延长而迅速增大,短期老化沥青针入度增长率为 64%,而长期老化沥青针入度增长率为 97%,从不同老化程度沥青针入度变化分析,老化程度越高的沥青在常温状态下扩散 1 天时的针入度增长速率更快。究其原因,老化程度越高的沥青中沥青质成分含量更多,芳香分含量更少^[25]。加入废食用油后,长期老化沥青中芳香分增量更为显著,进而反映在针入度变化上。扩散 1~5 天后针入度增加逐渐平缓,长期老化沥青增长速率由 97%减至 16%,短期老化沥青增长速率由 64%减至 8%。原因在于表层废食用油的浓度随着扩散的进

行而减少,浓度差的减少使废食用油的扩散减缓,同时老化沥青中沥青质等大分子对废食用油的扩散起阻碍作用。

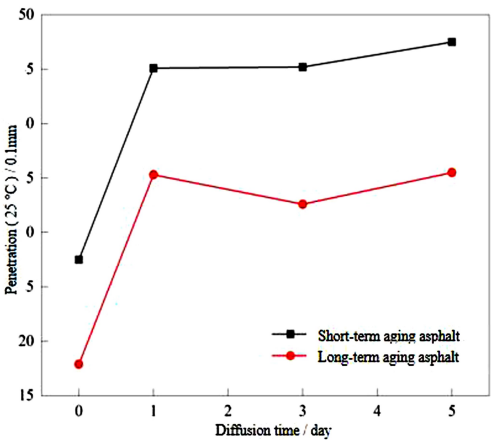


图 11 不同扩散时间下再生沥青针入度
Fig.11 Penetration of recycled asphalt under different diffusion time

2.2 复数模量与相位角变化规律

时间扫描 300 s 后,得出沥青老化前后与不同扩散时间下再生沥青的复数模量(G^*)、相位角($^\circ$)的值,见表 6。

表 6 不同扩散时间的沥青流变结果

Table 6 Rheological results of asphalt with different diffusion time

Targets of test	Asphalt	Aged asphalt	Diffusion 1 day recycled asphalt	Diffusion 3 days recycled asphalt	Diffusion 5 days recycled asphalt
Complex modulus/ $G^* \cdot \text{kPa}^{-1}$	52.10	76.89	71.76	67.66	61.54
Phase angle/ $(^\circ)$	68.50	46.30	59.30	61.50	65.20

由表 6 可知,基质沥青经过老化,其复数模量增加,相位角减少,结果表明老化后的基质沥青粘性成分下降,弹性成分增强。再生沥青复数模量与相位角大小随着再生剂扩散时间的延长,前者模量值减小,后者角度值增大,说明沥青弹性性能下降,变形恢复能力减弱,废食用油在短时间内起到软化老化沥青的作用,且具有良好的扩散能力;同时,再生沥青复数模量与相位角与老化沥青相比,更接近于基质沥青参数,沥青路用性能得到恢复。在常温状态下,随着废食用油在老化沥青扩散时间的延长,复数模量逐渐下降,相位角逐渐增大,这表明加入废食用油后的沥青粘性增大,弹性降低,老化沥青流变性能得到恢复。

2.3 官能团变化规律

对老化前后沥青、废食用油和不同扩散时间下再生沥青的截取面进行 FTIR 试验。沥青老化前后 FT-IR 光谱如图 12 所示,不同扩散时间下的再生沥青 FTIR 图谱如图 13 所示。

根据图 12 所示,出现在波数为 2 923 及 2 850 cm^{-1} 附近的强吸收峰为饱和烷烃 C—H 伸缩振动特征峰,出现在 1 744 及 1 724 cm^{-1} 附近的吸收峰为羰

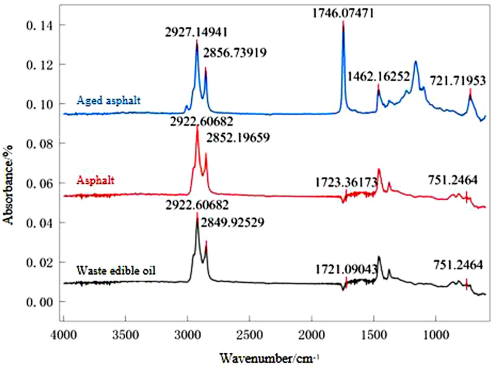


图 12 废食用油与沥青 FTIR 图谱
Fig.12 FTIR spectra of waste edible oil and asphalt

基特征峰,而芳香化合物主要出现在 880~680 cm^{-1} 波数附近,而本次研究在波数 730 cm^{-1} 附近的特征峰视为芳香族分子。本次研究分析随着废食用油扩散时间的延长,再生沥青官能团的变化规律,并根据羰基、芳香族官能团含量变化探讨废食用油在老化沥青中的扩散机理。羰基、芳香族官能团含量分别使用 I_{Cl} 、 I_{Al} 来表征。计算公式如下^[26]:

$$I_{\text{Cl}} = \frac{A_{\text{C=O}}}{A_{\text{C-H}}}$$

(1)

$$I_{AI}=\frac{A_{730}}{A_{C-H}}\tag{2}$$

式中： $A_{C=O}$ 为羰基特征峰面积； A_{C-H} 为饱和烷烃 C—H 的伸缩振动特征峰面积； A_{730} 为 730 cm^{-1} 波数附近芳香族特征峰面积。对不同扩散时间试样截取面以及基质、老化沥青相应特征峰求峰面积并公式计算。计算结果见表 7、8。

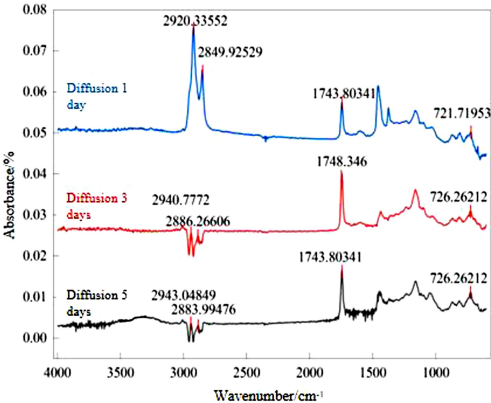


图 13 不同扩散时间下的再生沥青 FTIR 图谱
Fig.13 FTIR spectra of recycled asphalt under different diffusion time

表 7 沥青老化前后的羰基和芳香族指数

Table 7 Carbonyl and aromatic index of asphalt before and after aging

Asphalt type	I_{CI}	I_{AI}
Asphalt	0.21	0.23
Aged asphalt	0.26	0.22

表 8 不同扩散时间下的再生沥青的羰基与芳香族指数
Table 8 Carbonyl and aromatic index of recycled asphalt under different diffusion time

Sample diffusion time/day	I_{CI}	I_{AI}
1	0.38	0.34
3	0.56	0.18
5	0.53	0.28

由表 7 可知随着沥青的老化,羰基指数增加,芳香族指数减少。老化沥青羰基指数增加的原因是其芳香族成分发生氧化反应,生成了羰基、亚砷基等极性基团^[14];芳香族指数减少是因为在沥青老化过程中,部分芳香分和胶质转为沥青质,并且其内部轻质组分发生挥发现象,导致芳香分等轻质组分减少。

由表 8 再生沥青羰基与芳香族指数的变化趋势,表明随着扩散的进行,沥青试样的羰基指数随之增加,这是因为废食用油在 $1\,744\text{ cm}^{-1}$ 波数处出现峰值,说明其含有大量脂肪酸成分,废食用油中脂肪酸成分向老化沥青中扩散,使再生沥青的羰基指数随着扩散时间的延长而增大,特征峰面积 $A_{C=O}$ 没有随着 A_{C-H} 增加而减少,这表明老化沥青再生机理并非是发生氧化还原反应使羧酸中的羰基还原成甲基,而是增加了沥青中的轻质成分^[27],使轻质组分质量百分比得到一定

恢复。综上,废食用油在常温条件下向老化沥青扩散,同时,对老化沥青具有一定的再生效果。

2.4 模拟结果与分析

过 Forcite 模块中的 Analysis 功能进行对废食用油及老化沥青的均方位移分析。分析结果如图 14 所示。

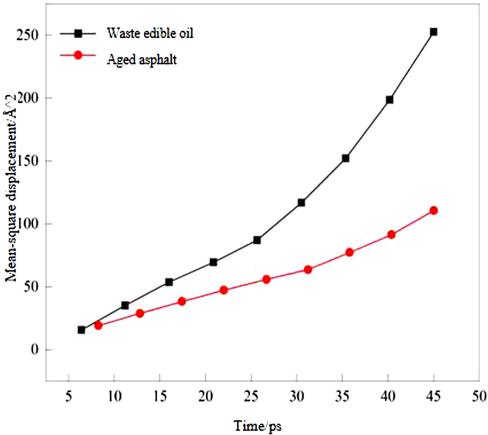


图 14 MSD 变化曲线
Fig.14 MSD change curve

由图 14 所知,两曲线 0~10 ps 变化高度重合,说明在此期间两分子微观变化具有高度相似性,在体系扩散前期,老化沥青与废食用油分子同时向中间迁移并接触,且迅速填充真空层,接着在 10~50 ps 这一阶段体系内的两物质构成开始向对方分子内部进行迁移,体现在两曲线同时呈上升趋势,但二者上升速率不一,表现在废食用油的 MSD 增幅大于老化沥青,说明在体系内部废食用油分子更易扩散。

扩散系数是指物质不受外界影响被扩散的速度,均方位移与扩散系数存在一定关系。其关系关系如下:扩散系数的值是均方位移曲线斜率的 $1/6$ ^[28],均方位移与扩散系数计算关系如下:

$$D=\lim_{t\rightarrow\infty}\frac{1}{6t}MSD(t)\tag{3}$$

式中: D 为扩散系数; MSD 为均方位移参数。经过 MS 2020 软件拟合得到的扩散系数(Diffusion coefficient)见表 9。

表 9 分子扩散系数

Table 9 Molecular diffusion coefficient

Molecular name	Diffusion coefficient/ $\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$
Aged asphalt	0.4857×10^{-9}
Waste edible oil	1.3789×10^{-9}

由表 9 扩散系数结果可知,两者的扩散系数值不相等。再生剂扩散系数大于老化沥青,故前者分子运动速度快于后者,废食用油分子相比老化沥青更易向对方扩散,这与老化沥青含有更多空隙有关^[6]。同时,废食用油与老化沥青在体系内部除了分子自扩散外,两分子相互扩散,互相交融,两分子可在较短时间内扩散至微观体系空隙处,故基于废食用油在 RAP 料冷再生应用中具有良好的扩散能力。

3 结 论

(1) 常温下废食用油可以增加沥青的针入度, 降低其黏度, 对老化沥青起到良好的再生效果。

(2) 常温下废食用油的扩散会使其内部芳香族分子不断发生迁移, 沥青中的羰基并没有发生氧化还原反应生成轻质成分, 再生沥青轻质组分含量的增多来自废食用油的扩散, 从而补充了沥青老化过程缺失的轻质组分, 使沥青的各组分质量百分比逐渐恢复老化前水平。

(3) 常温下加入废食用油后的再生沥青与老化沥青相比, 复数模量减少, 相位角增大, 其流变性能得到恢复。

(4) 经过分子动力学模拟发现, 废食用油与老化沥青分子除了在体系内自扩散, 还向对方分子进行扩散, 且废食用油的分子运动速度快于老化沥青分子, 表明废食用油向老化沥青扩散速度更快, 可以在短时间浸润软化老化沥青。

综上, 通过宏、微观试验, 分子动力学模拟结果可知, 常温状态下, 废食用油浸润软化老化沥青能力良好, 其作为再生剂在 RAP 料冷再生研究中得到良好应用。

参考文献:

- [1] McKinney J L. An investigation of recycling bituminous pavements [D]. Indiana: Purdue University, 1983.
- [2] Dinh B H, Park D W, Le T H M. Effect of rejuvenators on the crack healing performance of recycled asphalt pavement by induction heating [J]. Construction and Building Materials, 2018, 164(2): 246-254.
- [3] Soohyok I, Pravat K, Zhou F. Development of new mix design method for asphalt mixtures containing PAP and rejuvenators [J]. Construction and Building Materials, 2016, 115(4): 727-734.
- [4] Zhang F, Li H B, Zou X L, et al. Performance and simulation study of aged asphalt regenerated from waste engine oil [J]. Coatings, 2022, 12(8): 1121-1121.
- [5] Li P, Mu B B, Nian T F, et al. The diffusion behavior of rejuvenator in aged asphalt was characterized by Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) and fluorescence microscopy (FM) [J]. Journal of Materials Science and Engineering, 2022, 40(5): 767-784 (in Chinese).
李 萍, 慕博博, 念腾飞, 等. 红外光谱 (FTIR) 和荧光显微镜 (FM) 表征再生剂在老化沥青中的扩散行为 [J]. 材料科学与工程学报, 2022, 40(5): 767-784.
- [6] Xu M, Yi J Y, Feng D C, et al. Diffusion characteristics of asphalt rejuvenators based on molecular dynamics simulation [J]. International Journal of Pavement Engineering, 2019, 20(5): 615.
- [7] Xu M. Diffusion mechanism analysis of asphalt regenerator based on molecular dynamics simulation [D]. Harbin: Harbin Institute of Technology, 2015 (in Chinese).
许 勐. 基于分子动力学模拟的沥青再生剂扩散机理分析 [D]. 哈尔滨: 哈尔滨工业大学, 2015.
- [8] Cui Y N, Li X S, Zhang S Y, et al. Diffusion mechanism

of rejuvenator-aging asphalt based on molecular dynamics simulation [J]. Journal of Building Materials, 2021, 24(5): 1105-1109 (in Chinese).

崔亚楠, 李雪杉, 张淑艳. 基于分子动力学模拟的再生剂—老化沥青扩散机理 [J]. 建筑材料学报, 2021, 24(5): 1105-1109.

- [9] Cheng X P, Han S, Liu Y M, et al. Laboratory investigation on low-temperature performance of asphalt at different aging stages [J]. Construction and Building Materials, 2019, 229: 116850.
- [10] Yu X K, Zauamanis M, Santos S D, et al. Rheological, microscopic, and chemical characterization of the rejuvenating effect on asphalt binders [J]. Fuel, 2014, 135: 162-171.
- [11] Zhang Y, Chen M Z, Wu S P, et al. Study on the physical properties and structure of different waste oil recycled asphalt [J]. Wuhan University of Technology (Traffic Science and Engineering Edition), 2017, 41: 104-108 (in Chinese).
张 燕, 陈美祝, 吴少鹏, 等. 不同废弃油脂再生沥青的物理性能和结构研究 [J]. 武汉理工大学 (交通科学与工程版), 2017, 41: 104-108.
- [12] Li H B, Feng Z X, Ahmed A T, et al. Repurposing waste oils into cleaner aged asphalt pavement materials: a critical review [J]. Journal of Cleaner Production, 2022, 334: DOI:10.1016/j.jclepro.2021.130230.
- [13] Fu Z, Wang T, Liu S R, et al. Restoration capacity of bio-oil to recycled asphalt and determination of optimum content [J]. Journal of Functional Materials, 2024, 55(4): 4001-4006 (in Chinese).
傅 珍, 王 涛, 刘松然, 等. 不同生物油再生沥青性能比选 [J]. 功能材料, 2024, 55(4): 4001-4006.
- [14] Sun Z J, Yi J Y, Huang Y D, et al. Properties of asphalt binder modified by bio-oil derived from waste cooking oil [J]. Construction and Building Materials, 2016, 102: 496-504.
- [15] Kuang D L, Liu Y J, Niu C C, et al. Study on design and optimization of novelty asphalt rejuvenator composition based on crystal nucleus dispersion theory [J]. Construction and Building Materials, 2019, 222: 319-331.
- [16] Wang F L, Wang Y P, Zhang Q, et al. Study on regeneration effect and diffusion performance of asphalt regenerator [J]. Petrochemical Technology and Application, 2012, 30(1): 13-18 (in Chinese).
王凤楼, 王奕鹏, 张 强, 等. 沥青再生剂的再生效果与扩散性能研究 [J]. 石化技术与应用, 2012, 30(1): 13-18.
- [17] Yang W Z. Study on high and low temperature rheological properties of waste edible oil recycled asphalt [J]. Western Communicational Science, 2022, 11: 90-92 (in Chinese).
杨万智. 废食用油再生沥青高低温流变性能研究 [J]. 西部交通科技, 2022, 11: 90-92.
- [18] Yu K X, Sun G Q, Sun D Q. Research progress of asphalt-regenerant diffusion based on molecular dynamics simulation [J]. Petroleum Asphalt, 2021, 35(2): 27-34

- (in Chinese).
- 余可心,孙国强,孙大权. 基于分子动力学模拟的沥青-再生剂扩散研究进展[J]. 石油沥青, 2021, 35(2): 27-34.
- [19] Dong X G, Lei Q F, Yu Q S. NMR determination of petroleum asphaltene and its model molecule speculation [J]. Journal of Fuel Chemistry and Technology, 2004, 32(6): 672-688(in Chinese).
- 董喜贵,雷群芳,俞庆森. 石油沥青质的 NMR 测定及其模型分子推测[J]. 燃料化学学报, 2004, 32(6): 672-688.
- [20] Qi B F, Cao Z B, Chen L R, et al. The structural characteristics of gum and asphaltene of Shengli residue were studied by UV absorption spectroscopy [J]. Journal of Petrochemical Colleges and Universities, 2001, 14(3): 14-17(in Chinese).
- 齐邦峰,曹祖宾,陈立仁,等. 紫外吸收光谱研究胜利渣油胶质、沥青质结构特性[J]. 石油化工高等学校学报, 2001, 14(3): 14-17.
- [21] Fini E H, Kalberer E W, Shanbazi A, et al. Chemical characterization of biobinder from swine manure: Sustainable modifier for asphalt binder[J]. Journal of Materials in Civil Engineering, 2011, 23(11): 1506
- [22] Zadshir M, Hosseinneshad S, Fini E H. Deagglomeration of oxidized asphaltenes as a measure of true rejuvenation for severely aged asphalt binder [J]. Construction and Building Materials, 2019, 209: 416
- [23] Liu F J, Xin C, Guan M Y, et al. Based on molecular dynamics simulation, the diffusion behavior of waste edible oil-aging asphalt was studied[J]. Highway Engineering, 2022, 47(5): 120-125(in Chinese).
- 刘福军,辛 诚,管明阳,等. 基于分子动力学模拟研究废食用油-老化沥青的扩散行为[J]. 公路工程, 2022, 47(5): 120-125.
- [24] Wang P, Dong Z J, Tan Y Q, et al. Investigating the interactions of the saturate, aromatic, resin, and asphaltene four fractions in asphalt binders by molecular simulations[J]. Energy & Fuels, 2015, 29(1): 112-121.
- [25] Kuang D L, Yu J Y, Cai Z W, et al. The effect of regnerant on the regeneration performance of asphalt with different aging degrees[J]. Highway, 2011, 5(5): 153-157 (in Chinese).
- 况栋梁,余剑英,蔡正文,等. 再生剂对不同老化程度沥青再生性能的影响[J]. 公路, 2011, 5(5): 153-157.
- [26] Zhao Y L, Gu F, Huang X M. Analysis on SBS modified asphalt aging characterization based on Fourier transform infrared spectroscopy [J]. Journal of Building Material, 2011, 14(5): 620-623(in Chinese).
- 赵永利,顾 凡,黄晓明. 基于 FTIR 的 SBS 改性沥青老化特性分析[J]. 建筑材料学报, 2011, 14(5): 620-623.
- [27] Li M J. Study on UV aging performance of composite modified asphalt in eastern Inner Mongolia [D]. Hohhot: Inner Mongolia Agricultural University, 2020 (in Chinese).
- 李美坚. 内蒙古东部区复合改性沥青紫外老化性能研究 [D]. 呼和浩特: 内蒙古农业大学, 2020.
- [28] Tian Y J, Zheng M L, Liu Y M, et al. Analysis of behavior and mechanism of repairing agent of microcapsule in asphalt micro crack based on molecular dynamics simulation [J]. Construction and Building Materials, 2021, 305: 124791.

Analysis of diffusion behavior of waste edible oil and aged asphalt at room temperature

SHI Jingwen¹, LIU Mengmei¹, ZHOU Zhiyong¹, FAN Mizi¹,
WU Yonghao¹, YANG Jie², WEI Bicheng²

(1. School of Transportation and Civil Engineering, Fujian Agriculture and Forestry University,
Fuzhou 350108, China;

2. Fujian Provincial Key Laboratory of Highway Engineering,

Fujian Provincial High-speed Technical Consulting Co., Ltd., Fuzhou 350001, China)

Abstract: Exploring the diffusion behavior of regnerant in aged asphalt system at room temperature is helpful to the study of cold regeneration of asphalt mixture. The effects of waste edible oil on the penetration, functional groups, complex modulus and phase angle of aged asphalt under different diffusion time were studied from macro and micro scales by immersion method, Fourier transform infrared spectroscopy (FTIR) test and rotary rheometer test, and the test results were compared and analyzed. At the same time, based on the molecular dynamics theory, the molecular model of waste edible oil and aged asphalt was established, and the interface diffusion model was constructed. According to the diffusion coefficient, the diffusion behavior of the two in the system was revealed. The results show that waste edible oil can restore the basic technical performance of aged asphalt to a certain extent at room temperature, supplement the light components missing due to aging, and restore its rheological properties. In addition, molecular dynamics simulation shows that the movement speed of waste edible oil molecules is faster than that of aged asphalt molecules, indicating that waste edible oil can soften aged asphalt in a short time. Therefore, it can be seen that the efficiency of wetting and softening aging asphalt of waste edible oil at room temperature is good.

Key words: waste edible oil; aged asphalt; diffusion at room temperature; immersion method; FTIR; rheological test; molecular dynamics simulation